

Partitioning und Transmutation: Eine neue Perspektive bei der Behandlung nuklearer Abfälle?

W. Maschek, X. Cheng, A. Rinejski, R. Stieglitz, IKET; J. Konys, IMF; G. Müller, IHM;
C. Broeders, M. Schikorr, D. Struwe, IRS

Einleitung

Die „Transmutation“ zielt darauf ab, die von Reaktoren produzierten radiotoxischen Isotope, insbesondere Plutonium und die Mino-ren Aktiniden (Neptunium, Americium und Curium) in kurzlebige oder stabile Kerne umzuwandeln. Damit eröffnet die Transmutation die Perspektive die Menge und Radiotoxizität des letztendlich verbleibenden Abfalls deutlich zu verringern. Unter dem Begriff der nuklearen Transmutation kann man sowohl die Umwandlung durch Neutroneneinfang, (n, xn) -Prozesse, den radioaktiven Zerfall, als auch die effizienteste Form der Umwandlung, die Spaltung subsumieren.

Als eine Möglichkeit eines für die Transmutation geeigneten Systems wurden Anfang der 90er Jahre Beschleuniger-getriebene unterkritische Systeme (ADS) vorgeschlagen [1, 2, 3]. Im April 2001 wurde dann von der „European Technical Working Group on ADS“, der auch Mitglieder des Forschungszentrums angehörten, die „European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration“ [4] publiziert. Diese „Roadmap“ bildete die Grundlage für die weiter unten diskutierten Arbeiten an verschiedenen Projekten des 5. Rahmenprogramms der EU.

Das Konzept Beschleuniger-getriebener Systeme

Ein ADS besteht im Wesentlichen aus drei Komponenten: einer neutronenphysikalisch unterkritischen Anordnung von Brennelementen, einem Beschleuniger und einem Target, das die externe Neutronenquelle darstellt [5]. Über einen Beschleuniger (Linearbeschleuniger oder Zyklotron) werden hochenergetische Protonen durch ein evakuiertes Strahlrohr auf ein Target, bestehend aus einem schweren Element (z.B. einer Blei-Wismut (Pb-Bi) Legierung) geschossen und über Spallationsreaktionen werden freie Neutronen erzeugt. Die dabei entstehenden so genannten Quellneutronen dienen der Auslösung und Aufrechterhaltung einer Kettenreaktion in der unterkritischen Anordnung. In der Abb.1 ist der prinzipielle Aufbau dieses Systems dargestellt. In diesem System wird als Spallationsmedium und Kühlflüssigkeit die Schwermetalllegierung Pb-Bi benutzt. In der Tat werden verschiedene Targetvarianten untersucht, vom Festkörper bis zum besagten Pb-Bi. Als Kühlmedium für ein ADS wird neben Pb-Bi, Blei und Helium auch Natrium diskutiert.

Neutronenphysikalische Eigenschaften

In ADS Anlagen wird die Vernichtung der Abfälle im Wesentlichen durch Reaktionen mit Neutronen bewirkt. Eine effektive Vernichtung von Transuranen erfolgt hauptsächlich durch Spaltung, während andere Einfangsprozesse überwiegend zu einer Ver-

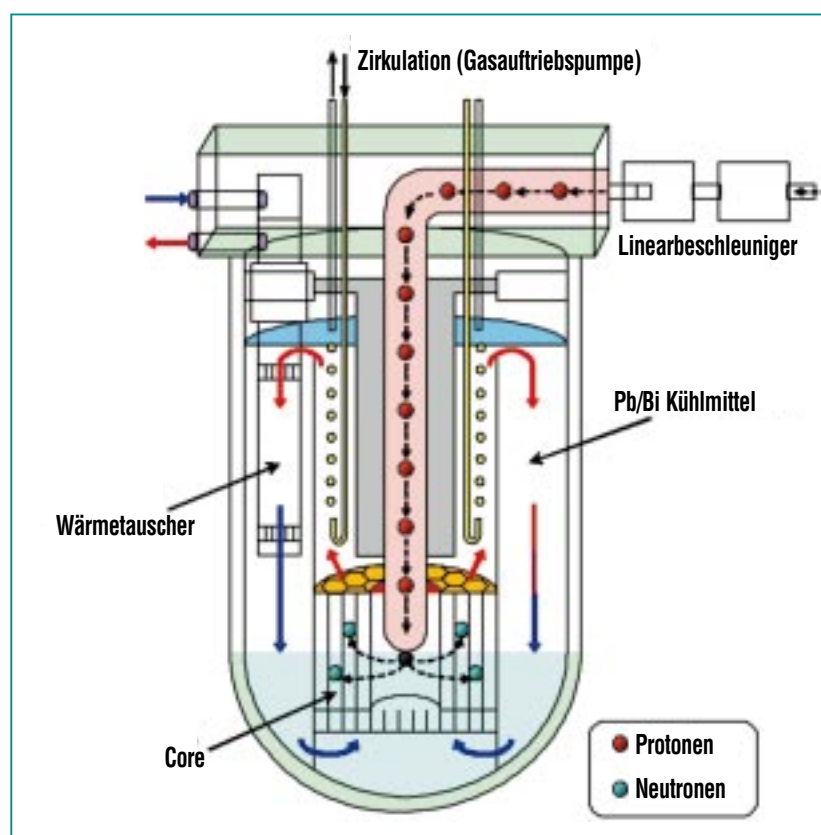


Abb.1: Schematische Darstellung eines Beschleuniger-getriebenen Systems.

schiebung innerhalb der Zusammensetzung der Transurane führen. In der Abb. 2 ist der Anteil der Spaltungen bei einem Neutroneneinfang in ausgewählten Brennstoffisotopen als Funktion der Neutronenenergie dargestellt. Man sieht, dass die Spaltwahrscheinlichkeit

generell für höhere Neutronenenergien oberhalb von etwa 100 KeV zunimmt. Bei einer Reihe von höheren Transuranen, wie in der Abbildung für Np^{237} , Am^{242} und Cm^{244} dargestellt, ist die Spaltwahrscheinlichkeit unterhalb etwa 1 MeV sehr klein.

Weiterhin ist bei diesen Anlagen die Zahl der erzeugten Neutronen bei den Spaltreaktionen wichtig, da die überschüssigen Neutronen für zusätzliche Einfänge zur Abfallvernichtung zur Verfügung stehen. In der Abb. 3 sind die erzeugten Spaltneutronen pro Neutroneneinfang in Abhängigkeit von der Neutronenenergie dargestellt. Auch bei diesem Vergleich zeigt sich, dass die Ausbeute oberhalb etwa 1 MeV günstig ist und dass diese mit zunehmender Massenzahl steigt.

Für die neutronenphysikalische Berechnung von beschleunigergetriebenen unterkritischen Reaktorsystemen hat sich für die Bestimmung von statischen Referenzlösungen das Monte Carlo Programm MCNPX (Los Alamos) als Standard-Programm etabliert. MCNPX ermöglicht für sehr komplexe geometrische Brennelementanordnungen eine zuverlässige Bestimmung aller notwendigen Systemparameter, ausgehend von den Spezifikationen des Protonenstrahls. Da Monte-Carlo-Methoden sehr rechenzeitaufwendig sind, werden für eine Reihe von Aufgaben auch deterministische Multi-Gruppen Rechenverfahren eingesetzt, z.B. für Abbrandrechnungen und für Sicherheitsuntersuchungen. Das im Forschungszentrum Karlsruhe über einen langen Zeitraum entwickelte Programmsystem KAPROS [6] bietet inzwischen eine Reihe von Spezialprozeduren, um Entwicklungsarbeiten für Beschleuniger-getriebene Systeme zu unterstützen.

Für eine Verbesserung der Datenbasis ist die Durchführung von geeigneten Experimenten zwin-

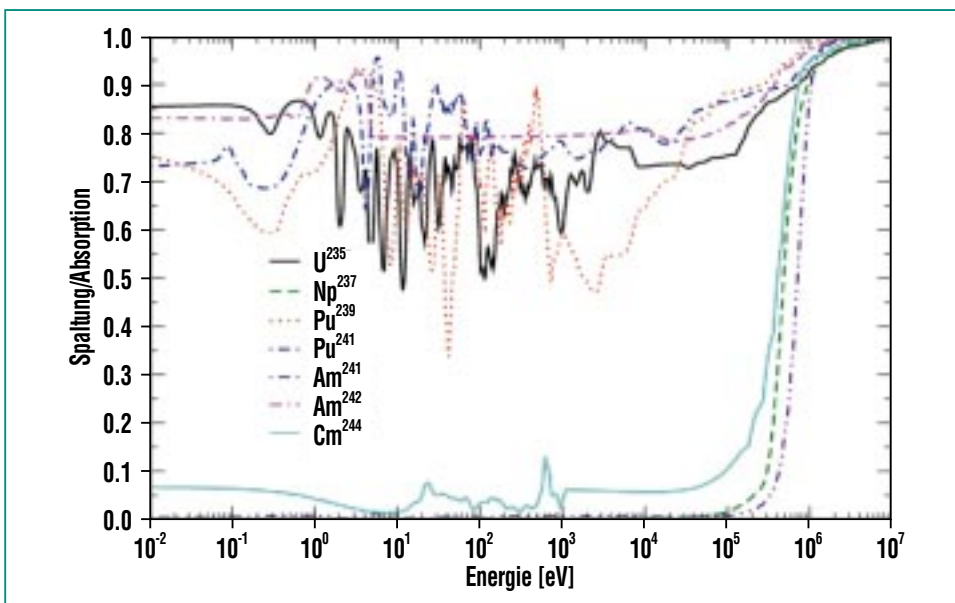


Abb. 2: Vergleich des Spaltanteils zum Gesamteinfang für ausgewählte Isotope.

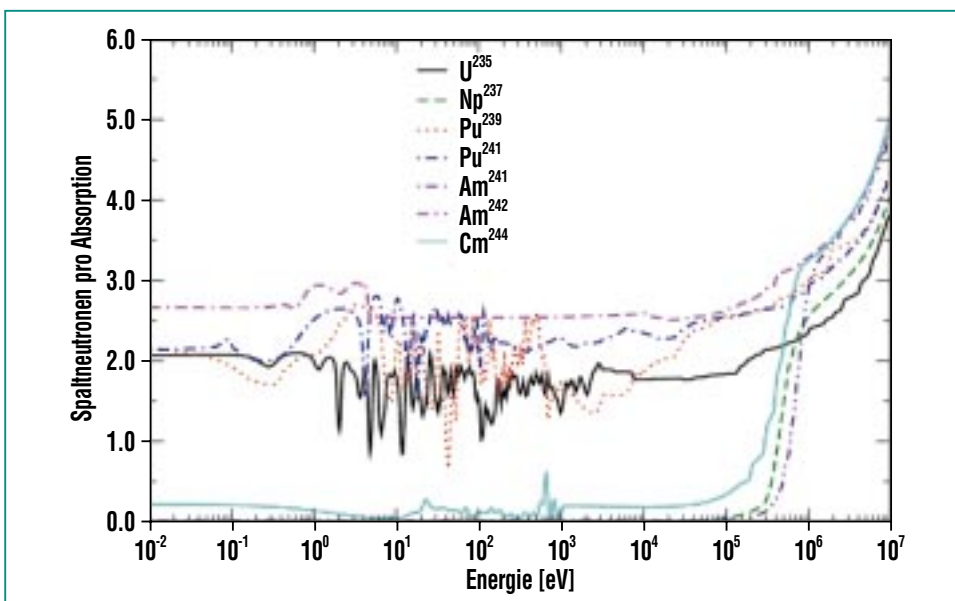


Abb. 3: Vergleich der Zahl der Spaltneutronen pro Einfang für ausgewählte Isotope.

gend erforderlich. Diese werden mit internationalen Partnern in Projekten der EU durchgeführt und erlauben es so die Kompetenz zu erhalten und einen schnellen Zugriff auf neue Ergebnisse zu erlangen. Beispiele hierfür sind die Beteiligung am MUSE Projekt oder auch die Mitarbeit als „Collaborator“ in ISTC Projekten. Das „International Scientific Technology Center“ ISTC in Moskau vermittelt finanzielle Unterstützung durch westliche Länder, wie USA und Japan, und Institutionen, wie die EU, für wissenschaftliche Projekte in Ost-Europa. Es handelt sich dabei sowohl um integrale Messungen an unterkritischen Anlagen mit starken Neutronenquellen als auch um differentielle Wirkungsquerschnittsmessungen.

In einem Beschleuniger-getriebenen unterkritischen System gehört der Targetbereich, wo der hochenergetische Protonenstrahl auftritt, zu den höchstbelasteten Komponenten. Neben den hohen Energiedichten und Energiedichtegradienten, die hier auftreten, werden auch Spallationsprodukte aus den Protonenreaktionen mit dem Targetmaterial erzeugt. Diese Spallationsprodukte können die chemischen und mechanischen Eigenschaften der Targetkomponenten stark beeinträchtigen. Da die Raten, mit denen die Spallationsprodukte erzeugt werden, noch nicht hinreichend genau experimentell abgesichert sind, wird zurzeit eine Reihe von Experimenten durchgeführt, um die Datenbasis für die Absicherung der Rechenprogramme zu verbessern.

Brennstoffe für einen ADS

Um möglichst hohe Transmutations- und Verbrennungsraten zu erzielen, müssen für einen ADS spezielle Brennstoffe entwickelt werden [7]. Diese Brennstoffe sollen kein U238 enthalten, da über U238 wieder neues Plutonium erbrütet werden würde. Die Brennstoffe müssen daher möglichst als reine Plutonium/MA-Brennstoffe (Americium und Curium), eingebettet in eine inerte Matrix, hergestellt werden. Der Anteil der Minoren Aktiniden soll dabei möglichst hoch sein. Gegenwärtig werden drei verschiedene Typen von Brennstoffen untersucht, die aus einer Vorausswahl als die geeignetsten hervorgehen:

- Mischkristall-Brennstoffe der Art: $(\text{Pu}, \text{Am}, \text{Cm}, \text{Zr})\text{O}_{2-x}$
- CERCER Brennstoffe der Art: $(\text{Pu}, \text{Am}, \text{Cm})\text{O}_{2-x} + \text{MgO}$
- CERMET Brennstoffe der Art: $(\text{Pu}, \text{Am}, \text{Cm})\text{O}_{2-x} + \text{Mo}^{92}$

Im Einzelnen wurden die folgenden Aspekte für die Auswahl eines für einen ADS geeigneten Brennstoffs näher untersucht [8]:

- Fabrikations-/Einsatzpotential:
- Abstand zum Brennstoffschmelzen bei nomineller Leistung
- Reaktivitätswert bei Kühlmitteilverdrängung
- Abbrand und Reaktivitätsverlust während eines Beladezyklus
- Spaltungswahrscheinlichkeit

Der Aufbau höherer Minorer Aktiniden, insbesondere des Curiums, soll in einem harten Neutronspektrum minimiert werden. Für die untersuchten Transmuter liegt im ersten Reaktorzyklus die Americiumverbrennungsrate bei etwa 120 kg/TWhe, die Plutoniumreduktion bei 20 kg/TWhe bei gleichzeitigem Cm-Aufbau von 12 kg/TWhe.

Zur Zeit wird auf Grund der obigen Kriterien eine MgO-Matrix für die CERCER-Brennstoffe favorisiert. Für CERMET ist die Wahl auf Mo-92 gefallen. Insgesamt zeigt sich, dass die Brennstoffentwicklung einer der wesentlichen „Eckpfeiler“ für die ADS Entwicklung ist.

Thermohydraulikprobleme eines ADS

Schwere Flüssigmetalle werden weltweit als Kühlmedium für die Brennelementanordnung und das Spallationstarget favorisiert. Ihre Fähigkeit, als Kühlmedium und als Spallationsmaterial eingesetzt zu werden, erlaubt den Einsatz einfacher Target- oder Fenstergeometrien.

Durch die Spallationsreaktionen im Fluid werden große Wärmemengen, in der Größenordnung von 1000 W/cm^3 , freigesetzt. Die Fähigkeit der zu allen Betriebszeitpunkten sicheren Wärmeabfuhr aus der Spallationsregion des Targets stellt eine der größten technischen Herausforderungen bei der Auslegung eines Targets dar. Darüber hinaus erfordert die Auslegung eines vollständigen ADS mit allen ihm zugehörigen Komponenten eine detaillierte Kenntnis des thermohydraulischen Verhaltens.

lischen Verhaltens schwerer Flüssigmetalle bei allen nominellen und gestörten Betriebszuständen. Es ist daher für die thermohydraulische Auslegung der Anlagenkomponenten von fundamentaler Bedeutung, numerische Werkzeuge und experimentelle Plattformen zur Verfügung zu stellen, mit denen die Geschwindigkeits- und Temperaturverteilung der schweren Flüssigmetall-

strömung innerhalb der Komponenten verlässlich bestimmt werden kann.

Der Hauptgegenstand der thermohydraulischen Aktivitäten des Forschungszentrums besteht daher darin, eine experimentelle Datenbasis sowie verlässliche Analysewerkzeuge bereit zu stellen, mit Hilfe derer ADS-Komponenten ausgelegt werden können.

Die basisphysikalischen Experimente wie auch die Komponentenexperimente werden im Schwerflüssigmetalllabor KALLA des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. Das KALLA-Labor ist modular aufgebaut und besteht aus drei Flüssigmetallkreisläufen unterschiedlicher Größe und Aufgaben: THESYS, THEADES und CORRIDA (siehe auch <http://www.kalla.fzk.de>).

Eine semitechnische Skizze des THESYS Kreislaufs ist in der Abb. 4 dargestellt. Dieser dokumentiert seit 20.000 Betriebsstunden die zuverlässige und störungsfreie Realisierbarkeit eines Kreislaufs, der mit schwerem Flüssigmetall betrieben wird.

Im großen Flüssigmetallkreislauf THEADES (THERmal-hydraulics and ADS DESIGN) werden thermohydraulische Untersuchungen an vollständigen Einzelkomponenten eines ADS im geometrischen Maßstab 1:1 durchgeführt. Die dabei innerhalb einer bestimmten Geometrie gewonnenen Ergebnisse dienen einerseits der Verifizierung von numerischen Simulationen und andererseits der Unterstützung einzelner Subsegmente der Systemauslegung.

Die Forschungsaktivitäten der Technologieexperimente im THEADES-Kreislauf orientieren sich an folgenden Schwerpunkten:

1. Kühlbarkeit eines Targetfensters in unterschiedlichen geometrischen Konfigurationen.
2. ADS relevante Brennelemententwicklung.

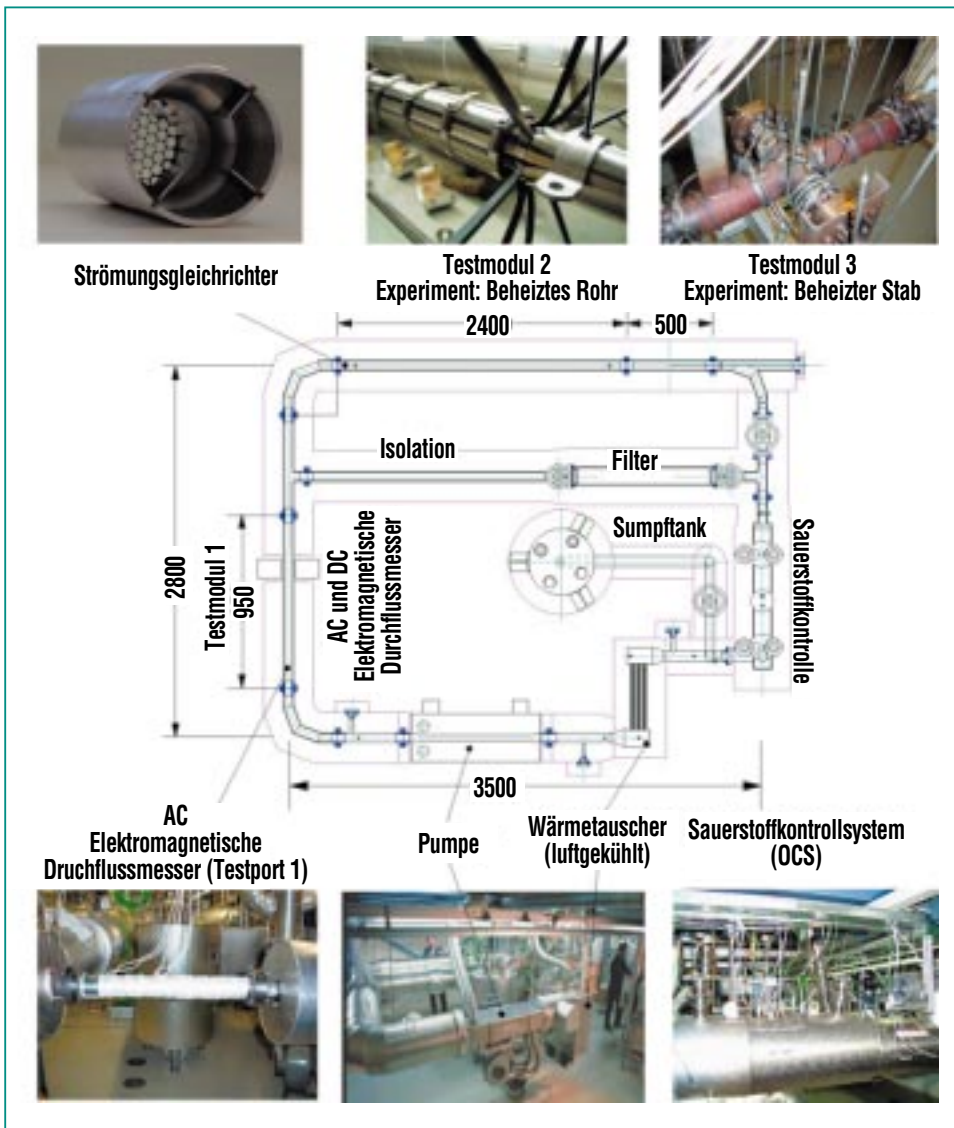


Abb. 4: Semitechnische Ansicht und Fotografien des THESYS-Flüssigmetallkreislaufs des KALLA-Labors am Forschungszentrum.

3. Bereitstellung einer thermohydraulischen Datenbank
4. Entwicklung physikalischer Modelle und Verifikation numerischer Rechenverfahren.

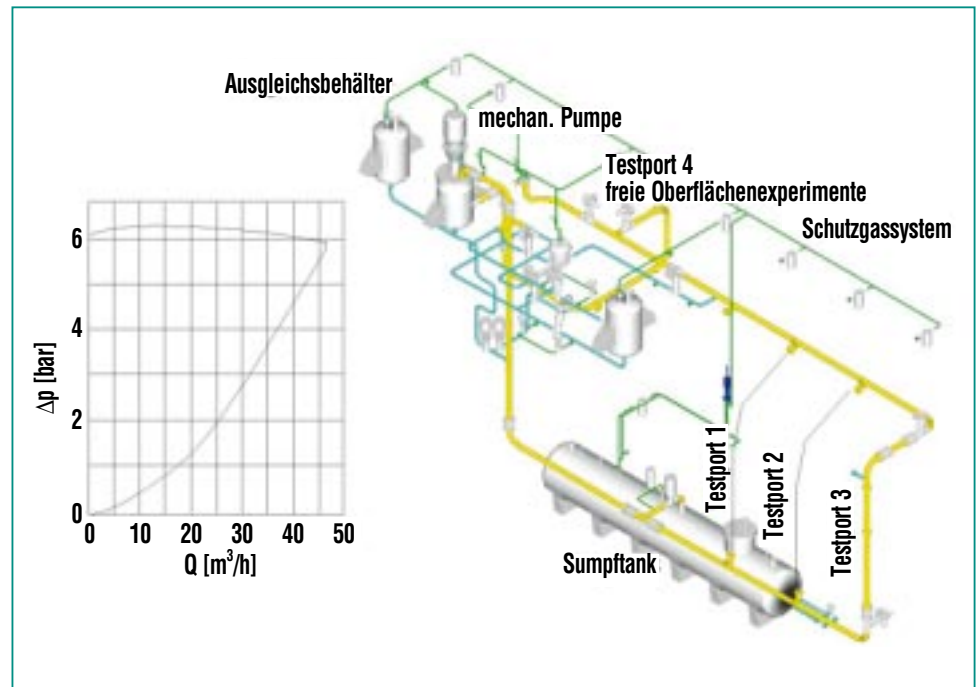
Der THEADES-Kreislauf, dessen Leistungscharakteristik und Schemaskizze in Abb. 5 dargestellt ist, wurde erstmals im November 2002 in Betrieb genommen und hat sich seither bei der Durchführung von zwei Großexperimenten zum MEGAPIE-Target bewährt.

Verhalten von Strukturmaterialien in Blei-Wismut Kreisläufen

Zum Design, Bau und zur geplanten Demonstrationsphase von ADS-Anlagen ist es notwendig, die Eignung von Strukturmaterialien im strömenden eutektischen Pb-Bi bei hohen Anlagentemperaturen von etwa 550°C eingehend zu untersuchen. Frühere Studien haben gezeigt, dass Pb-Bi sehr korrosiv gegenüber austenitischen und auch ferritisch-martensitischen Stählen sein kann [9]. Insbesondere muss wegen der hohen Löslichkeit von Eisen, Chrom und vor allem Nickel im Pb-Bi ein Lösungsangriff auf diese Stähle unbedingt vermieden werden. Dieser korrosive Angriff kann bis zum vollständigen Verlust der strukturellen Integrität und damit zum Komponentenversagen führen.

Oxidische Schutzschichten können den Lösungsangriff auf Stahl so weit verhindern, dass die Korrosion auf ein Maß zurückgeht, dass eine ausreichend lange Lebensdauer der Strukturen ge-

Abb. 5: Leistungscharakteristik des THEADES-Kreislaufs im KALLA-Labor (links) und schematische Darstellung des dazugehörigen Leitungsnetzes mit den parallel betriebenen Testports 1 - 4 (rechts).



währleistet [10,11]. Voraussetzung für die lang dauernde Schutzwirkung der Oxidschichten ist sowohl eine ausreichende Dichte und Hemmung gegen die Diffusion von Metallionen als auch ihre Stabilität und Haftfestigkeit auf dem Strukturwerkstoff. Diese Eigenschaften werden wesentlich von der Legierungszusammensetzung der aktiven Oberflächenschicht bestimmt. Eine Langzeitstabilität der Oxidschichten kann nur gewährleistet werden, wenn im flüssigen Pb-Bi das Sauerstoffpotential in einem Bereich liegt, in dem sich die Oxide auf der Stahloberfläche nicht zersetzen. Es darf jedoch nicht so hoch sein, dass Bleioxid ausfällt und sich im Kreislauf ablagert. Das erfordert die kontinuierliche

Kontrolle der Sauerstoffkonzentration im Pb-Bi [11,12].

Eine verstärkte Schutzschichtbildung wird erreicht, wenn in die Oberfläche stabile Oxidbildner wie Al einlegiert werden. Diese sorgen dafür, dass dichte langsam wachsende Oxidschichten aus Al_2O_3 entstehen, die auch bei Temperaturen über 550 °C stabil bleiben und deshalb einen Schutz für hoch belastete Komponenten darstellen. Das Einlegieren von Al in die Materialoberfläche wird vorzugsweise mit dem GESA-Verfahren durchgeführt [13]. Dabei wird das Al, welches vorher auf der Oberfläche abgeschieden wurde, durch Umschmelzen der Oberfläche mit gepulsten Elektronenstrahlen bis in eine Tiefe von 10 – 15 µm einlegiert.

Testeinrichtungen

Der Kreislauf CORRIDA zur Untersuchung des Strukturmaterialverhaltens enthält etwa 100 l flüssiges Pb-Bi, das mittels einer elektromagnetischen Pumpe mit 3 m³/h umgepumpt wird (siehe Abb. 6). Im über zwei Etagen reichenden Kreislauf wird das flüssige Pb-Bi auf einer gesamten Rohrlänge von etwa 36 m kontinuierlich bei Temperaturen zwischen 400 und 550°C mit 3,5 m³/h umgepumpt, wobei mehrere durch die einzelnen Kreislaufkomponenten vorgegeben Temperaturgradienten durchlaufen werden.

In Strömungsrichtung wird die Schmelze von 400°C im Gegenstromwärmetauscher zunächst auf 510°C aufgeheizt. In den beiden hintereinander geschalteten Überhitzern, die elektrisch beheizt werden, wird die Schmelze dann um jeweils 20 K bis auf die maximale Kreislauftemperatur von 550°C gebracht. Nach dem Durchlauf durch die beiden Teststrecken mit 2 m/s gelangt das Pb-Bi in die Sauerstoffkontrollbox. Dort wird bei 550°C mit durchfließendem Ar, das H₂ und H₂O im Verhältnis 0,4:1 enthält, ins Gleichgewicht gebracht. Zur Konditionierung des Gases wird eine im Forschungszentrum ent-

wickelte Apparatur eingesetzt [14]. Danach beträgt die Sauerstoffkonzentration im Pb-Bi 10⁻⁶ Gew%. Die Messung der Sauerstoffaktivität in der Schmelze wird mit Sonden, die YSZ (Yttria Stabilized Zirconia) als Elektrolyt verwenden, durchgeführt [6]. Bis heute liegen aus diesem Kreislauf Testproben mit einer Versuchsdauer von 2000 h vor, die sich nicht wesentlich von den bislang aus Experimenten mit stagnierendem Pb-Bi unterscheiden. Austenite können aufgrund ihres hohen Ni-Gehalts, selbst unter günstigsten Bedingungen bezüglich der Sauerstoffaktivität im Flüssigmetall und einer Ein-

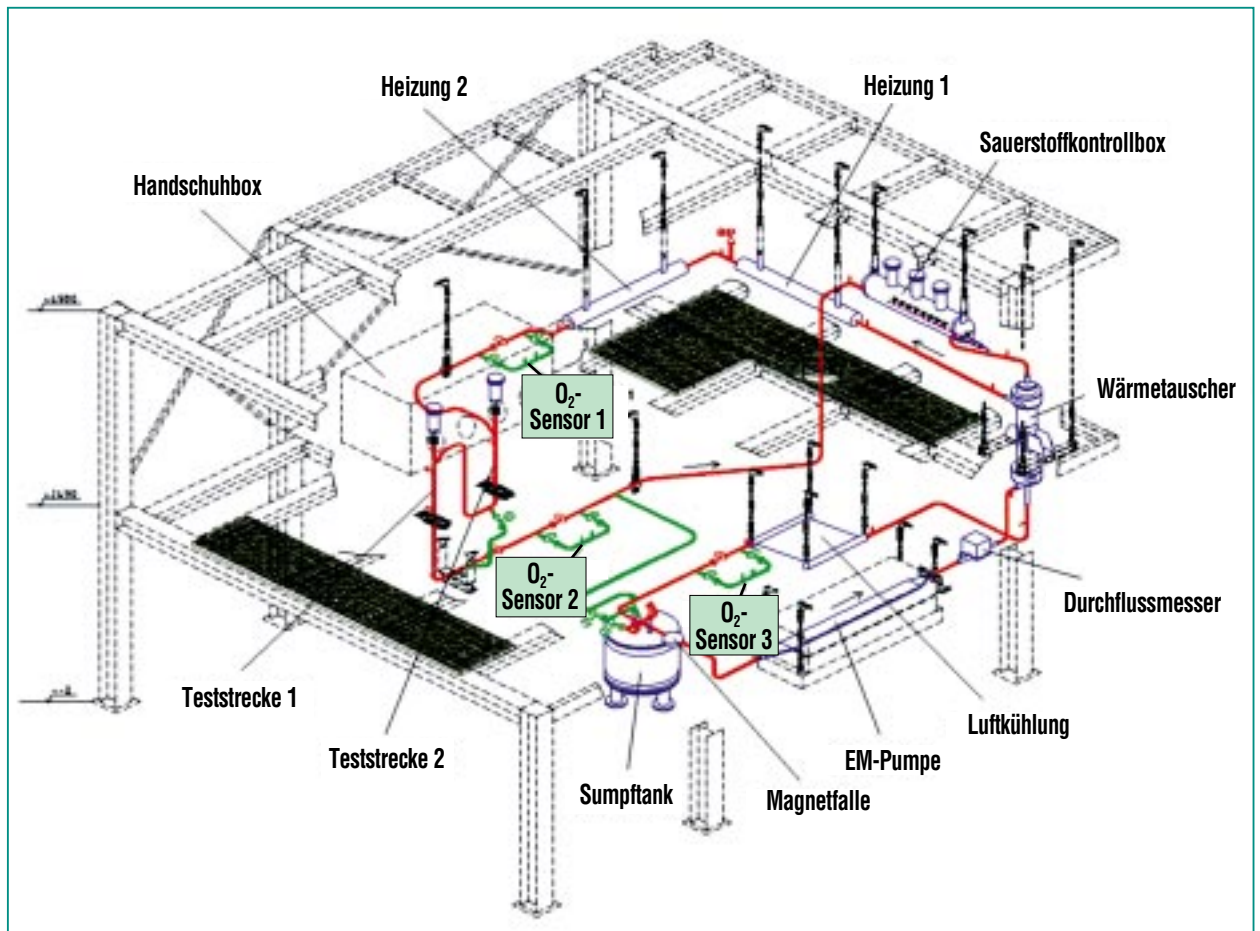


Abb. 6: Schematische Darstellung der Komponenten des CORRIDA-Kreislaufs.

satzdauer von > 10000 h, nur bis zu Temperaturen von unter 500°C eingesetzt werden. Martensitische Stähle verhalten sich etwas günstiger und sind bis zu etwas höheren Temperaturen von 550°C verwendbar. Alle Stähle, die mittels des am Forschungszentrum entwickelten GESA-Oberflächenumschmelzprozesses in der Oberfläche mit Al legiert wurden, zeigen über den gesamten Temperaturbereich ein hervorragendes Verhalten.

Zusammenfassung

Partitioning und Transmutation (P&T) eröffnet eine neue Perspektive langlebige Radionuklide in kurzlebige bzw. stabile Elemente

umzuwandeln und das mit ihnen zusammenhängende Langzeitgefährdungspotential auf einen technisch kontrollierbaren Zeitraum zu reduzieren. Nach heutigem Kenntnisstand sind mit Beschleunigern getriebenen Anlagen gute Verbrennungs- und Transmutationsraten zu erwarten.

Als die strategisch wichtigsten „Eckpfeiler“ einer Anlagenentwicklung sind die Brennstoffentwicklung, die Entwicklung zur Technologie von Flüssigmetallen als Kühlmittel und die Entwicklung geeigneter Strukturmaterialien zu sehen. Darüber hinaus gibt es eine Reihe offener Fragen im Bereich der stationären neutronenphysikalischen Auslegung und der sicherheitstechnischen

Bewertung der neuartigen Systementwürfe, zu deren Lösung die Forschungsarbeiten des Zentrums beitragen. Alle diese Arbeiten sind eingebunden in Aktivitäten, die im Rahmen des Forschungsprogramms der EU verfolgt und gefördert werden.

Literatur

- [1] C.D. Bowman et.al., *Nuclear Instruments and Methods*.(1992) p.336
- [2] G.J. van Tuyle, H. Takahashi, M. Todoscow, *BNL 52279* (1991)
- [3] F. Carminati, R. Klapisch, J.P. Revol, J. A. Rubio, C. Rubia, *CERN AT/93-47(ET)* (1993)
- [4] *The European Technical Working Group on ADS, A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration, ENEA (April 2001)*
- [5] J.U. Knebel, G. Heusener, *Sonderheft Radioaktivität und Kernenergie, Forschungszentrum Karlsruhe* (2001)
- [6] C.H.M. Broeders, R. Dagan, V. Sanchez, A.Travleev, *Proc. Reaktortagung Düsseldorf* (2004)
- [7] R.J.M. Konings (ed), *EUR 19928 EN, Institut for Transuranium Elements* (2001)
- [8] S. Pillon, P. Smith, J. Wallenius, W. Maschek, *GLOBAL 2003, New Orleans, Nov. 16-20* (2003)
- [9] G.Y. Lai, ASM Int., Materials Park, OH 44073, (1990)
- [10] R.C. Asher, D. Davies, S.A. Beetham, *Corrosion Sci.*, 17 (1977) p. 545
- [11] B.F. Gromov et.al., *Liquid Metal Systems, Plenum, New York* (1995) p. 339
- [12] G. Müller, G. Schumacher, F. Zimmermann, *J. Nucl. Mater.* 278 (2000) p. 85
- [13] G. Müller, *FZKA 6422* (2000)
- [14] G. Müller, A. Heinzl, G. Schumacher, A. Weisenburger, *J. Nucl. Mater.* 321 (2003) p. 256